

PCT

REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference
(if desired) (12 characters maximum) PCT2069HM

Box No. I TITLE OF INVENTION

PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE AND PATCH EMPLOYING THE SAME

Box No. II APPLICANT

☐ This person is also inventor

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC.

408, Tashirodaikanmachi, Tosu-shi,
Saga 841-0017 JAPANTelephone No.
03-5293-1712Facsimile No.
03-5293-1730

Teleprinter No.

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality:

JP

State (that is, country) of residence:

JP

This person is applicant
for the purposes of:☐ all designated
States☒ all designated States except
the United States of America☐ the United States
of America only☐ the States indicated in
the Supplemental Box

Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

YASUKOCHI, Takashi
c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC.,
Tsukuba Research Laboratories, 25-11,
Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi,
Ibaraki 305-0856 JAPAN

This person is:

☐ applicant only☒ applicant and inventor☐ inventor only (If this check-box
is marked, do not fill in below.)

Applicant's registration No. with the Office

State (that is, country) of nationality:

JP

State (that is, country) of residence:

JP

This person is applicant
for the purposes of:☐ all designated
States☐ all designated States except
the United States of America☒ the United States
of America only☐ the States indicated in
the Supplemental Box☒ Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE

The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as:

☒ agent☐ common
representative

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.)

KUZUWA, Kiyoshi (10284), patent attorney
Patent Attorneys, KUZUWA & PARTNERS,
AOI Bldg., Honshio-cho 19, Shinjuku-ku,
Tokyo 160-0003 JAPANTelephone No.
03-5366-9961Facsimile No.
03-5366-9960

Teleprinter No.

Agent's registration No. with the Office

☐ Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.

Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)	
<i>If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request.</i>	
<p>Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</p> <p>YAMAGUCHI, Toshiro c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0856 JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)</p>
State (that is, country) of nationality: JP	State (that is, country) of residence: JP
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</p> <p>TATEISHI, Tetsuro c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0856 JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)</p>
State (that is, country) of nationality: JP	State (that is, country) of residence: JP
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</p> <p>HIGO, Naruhito c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-0856 JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)</p>
State (that is, country) of nationality: JP	State (that is, country) of residence: JP
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)</p>
State (that is, country) of nationality:	State (that is, country) of residence:
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p><input type="checkbox"/> Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.</p>	

Box No.V DESIGNATION OF STATES

Mark the applicable check-boxes below; at least one must be marked.

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a):

Regional Patent

- ☒ **AP ARIPO Patent:** GH Ghana, GM Gambia, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, MZ Mozambique, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swaziland, TZ United Republic of Tanzania, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- ☒ **EA Eurasian Patent:** AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakhstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- ☒ **EP European Patent:** AT Austria, BE Belgium, CH & LI Switzerland and Liechtenstein, CY Cyprus, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, TR Turkey, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- ☒ **OA OAPI Patent:** BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):

- | | | |
|---|--|--|
| <input checked="" type="checkbox"/> AE United Arab Emirates | <input checked="" type="checkbox"/> GE Georgia | <input checked="" type="checkbox"/> MW Malawi |
| <input checked="" type="checkbox"/> AG Antigua and Barbuda | <input checked="" type="checkbox"/> GH Ghana | <input checked="" type="checkbox"/> MX Mexico |
| <input checked="" type="checkbox"/> AL Albania | <input checked="" type="checkbox"/> GM Gambia | <input checked="" type="checkbox"/> MZ Mozambique |
| <input checked="" type="checkbox"/> AM Armenia | <input checked="" type="checkbox"/> HR Croatia | <input checked="" type="checkbox"/> NO Norway |
| <input checked="" type="checkbox"/> AT Austria | <input checked="" type="checkbox"/> HU Hungary | <input checked="" type="checkbox"/> NZ New Zealand |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU Australia | <input checked="" type="checkbox"/> ID Indonesia | <input checked="" type="checkbox"/> PL Poland |
| <input checked="" type="checkbox"/> AZ Azerbaijan | <input checked="" type="checkbox"/> IL Israel | <input checked="" type="checkbox"/> PT Portugal |
| <input checked="" type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina | <input checked="" type="checkbox"/> IN India | <input checked="" type="checkbox"/> RO Romania |
| | <input checked="" type="checkbox"/> IS Iceland | <input checked="" type="checkbox"/> RU Russian Federation |
| <input checked="" type="checkbox"/> BB Barbados | <input type="checkbox"/> JP Japan | |
| <input checked="" type="checkbox"/> BG Bulgaria | <input checked="" type="checkbox"/> KE Kenya | <input checked="" type="checkbox"/> SD Sudan |
| <input checked="" type="checkbox"/> BR Brazil | <input checked="" type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan | <input checked="" type="checkbox"/> SE Sweden |
| <input checked="" type="checkbox"/> BY Belarus | <input checked="" type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea | <input checked="" type="checkbox"/> SG Singapore |
| <input checked="" type="checkbox"/> BZ Belize | <input checked="" type="checkbox"/> KR Republic of Korea | <input checked="" type="checkbox"/> SI Slovenia |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA Canada | <input checked="" type="checkbox"/> KZ Kazakhstan | <input checked="" type="checkbox"/> SK Slovakia |
| <input checked="" type="checkbox"/> CH & LI Switzerland and Liechtenstein | <input checked="" type="checkbox"/> LC Saint Lucia | <input checked="" type="checkbox"/> SL Sierra Leone |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China | <input checked="" type="checkbox"/> LK Sri Lanka | <input checked="" type="checkbox"/> TJ Tajikistan |
| <input checked="" type="checkbox"/> CO Colombia | <input checked="" type="checkbox"/> LR Liberia | <input checked="" type="checkbox"/> TM Turkmenistan |
| <input checked="" type="checkbox"/> CR Costa Rica | <input checked="" type="checkbox"/> LS Lesotho | <input checked="" type="checkbox"/> TR Turkey |
| <input checked="" type="checkbox"/> CU Cuba | <input checked="" type="checkbox"/> LT Lithuania | <input checked="" type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago |
| <input checked="" type="checkbox"/> CZ Czech Republic | <input checked="" type="checkbox"/> LU Luxembourg | <input checked="" type="checkbox"/> TZ United Republic of Tanzania |
| <input checked="" type="checkbox"/> DE Germany | <input checked="" type="checkbox"/> LV Latvia | <input checked="" type="checkbox"/> UA Ukraine |
| <input checked="" type="checkbox"/> DK Denmark | <input checked="" type="checkbox"/> MA Morocco | <input checked="" type="checkbox"/> UG Uganda |
| <input checked="" type="checkbox"/> DM Dominica | <input checked="" type="checkbox"/> MD Republic of Moldova | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America |
| <input checked="" type="checkbox"/> DZ Algeria | <input checked="" type="checkbox"/> MG Madagascar | <input checked="" type="checkbox"/> UZ Uzbekistan |
| <input checked="" type="checkbox"/> EE Estonia | <input checked="" type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia | <input checked="" type="checkbox"/> VN Viet Nam |
| <input checked="" type="checkbox"/> ES Spain | <input checked="" type="checkbox"/> MN Mongolia | <input checked="" type="checkbox"/> YU Yugoslavia |
| <input checked="" type="checkbox"/> FI Finland | | <input checked="" type="checkbox"/> ZA South Africa |
| <input checked="" type="checkbox"/> GB United Kingdom | | <input checked="" type="checkbox"/> ZW Zimbabwe |
| <input checked="" type="checkbox"/> GD Grenada | | |

Check-boxes below reserved for designating States which have become party to the PCT after issuance of this sheet:

- | | | |
|--|--|---|
| <input checked="" type="checkbox"/> EC Ecuador | <input checked="" type="checkbox"/> OM Oman | <input checked="" type="checkbox"/> TN Tunisia |
| <input checked="" type="checkbox"/> ZM Zambia | <input checked="" type="checkbox"/> PH the Philippines | <input checked="" type="checkbox"/> VC Saint Vincent and the Grenadines |

Precautionary Designation Statement: In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all other designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) indicated in the Supplemental Box as being excluded from the scope of this statement. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation (including fees) must reach the receiving Office within the 15-month time limit.)

Box No. VI PRIORITY CLAIM

The priority of the following earlier application(s) is hereby claimed:

Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:		
		national application: country	regional application:* regional Office	international application: receiving Office
item (1) 25.01.02	Patent Appln. 2002-16794	Japan		
item (2)				
item (3)				
item (4)				
item (5)				

☐ Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.

The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of this international application is the receiving Office) identified above as:

☒ all items ☐ item (1) ☐ item (2) ☐ item (3) ☐ item (4) ☐ item (5) ☐ other, see Supplemental Box

* Where the earlier application is an ARIPO application, indicate at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property or one Member of the World Trade Organization for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)):

Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

Choice of International Searching Authority (ISA) (if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used):

ISA / JP

Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority):

Date (day/month/year)

Number

Country (or regional Office)

Box No. VIII DECLARATIONS

The following declarations are contained in Boxes Nos. VIII (i) to (v) (mark the applicable check-boxes below and indicate in the right column the number of each type of declaration):

Number of
declarations

- | | | |
|---|--|---|
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII (i) | Declaration as to the identity of the inventor | : |
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII (ii) | Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing date, to apply for and be granted a patent | : |
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII (iii) | Declaration as to the applicant's entitlement, as at the international filing date, to claim the priority of the earlier application | : |
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII (iv) | Declaration of inventorship (only for the purposes of the designation of the United States of America) | : |
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII (v) | Declaration as to non-prejudicial disclosures or exceptions to lack of novelty | : |

Box No. IX CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING

This international application contains:

(a) the following number of sheets in paper form:

request (including declaration sheets) : 5
description (excluding sequence listing part) : 14
claims : 1
abstract : 1
drawings : 0

Sub-total number of sheets : 21

sequence listing part of description (actual number of sheets if filed in paper form, whether or not also filed in computer readable form; see (b) below) :

Total number of sheets : 21

(b) sequence listing part of description filed in computer readable form

(i) ☐ only (under Section 801(a)(i))

(ii) ☐ in addition to being filed in paper form (under Section 801(a)(ii))

Type and number of carriers (diskette, CD-ROM, CD-R or other) on which the sequence listing part is contained (additional copies to be indicated under item 9(ii), in right column):

This international application is accompanied by the following item(s) (mark the applicable check-boxes below and indicate in right column the number of each item):

Number of items

1. ☒ fee calculation sheet : 1
2. ☒ original separate power of attorney : 1
3. ☐ original general power of attorney :
4. ☐ copy of general power of attorney; reference number, if any: :
5. ☐ statement explaining lack of signature :
6. ☐ priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): :
7. ☐ translation of international application into (language): :
8. ☐ separate indications concerning deposited microorganism or other biological material :
9. ☐ sequence listing in computer readable form (indicate also type and number of carriers (diskette, CD-ROM, CD-R or other))
 - (i) ☐ copy submitted for the purposes of international search under Rule 13ter only (and not as part of the international application) :
 - (ii) ☐ (only where check-box (b)(i) or (b)(ii) is marked in left column) additional copies including, where applicable, the copy for the purposes of international search under Rule 13ter :
 - (iii) ☐ together with relevant statement as to the identity of the copy or copies with the sequence listing part mentioned in left column :
10. ☐ other (specify): :

Figure of the drawings which should accompany the abstract:

Language of filing of the international application:

Japanese

Box No. X SIGNATURE OF APPLICANT, AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE

Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).

KUZUWA, Kiyoshi (seal)

For receiving Office use only

1. Date of actual receipt of the purported international application:	2. Drawings: <input type="checkbox"/> received: <input type="checkbox"/> not received:
3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application:	
4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2):	
5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA / JP	6. <input type="checkbox"/> Transmittal of search copy delayed until search fee is paid

For International Bureau use only

Date of receipt of the record copy by the International Bureau:

特許協力条約に基づく国際出願
願 書

出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。

国際出願番号	受理 記入欄
国際出願日	PCT 24.1.03 受領印
(受付印)	

出願人又は代理人の書類記号 (希望する場合、最大12字) PCT2069HM

第I欄 発明の名称

粘着剤およびこれを用いてなる貼付製剤

第II欄 出願人

☐ この欄に記載した者は、発明者でもある。

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

久光製薬株式会社
HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC.
〒841-0017 日本国佐賀県鳥栖市田代大官町408番地
408, Tashirodaikanmachi, Tosu-shi, Saga 841-0017 JAPAN

電話番号:
03-5293-1712

ファクシミリ番号:
03-5293-1730

加入電話番号:

出願人登録番号:

国籍 (国名): 日本国 JAPAN

住所 (国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☒ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 追加欄に記載した指定国

第III欄 その他の出願人又は発明者

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

安河内 崇 YASUKOCHI Takashi
〒305-0856 日本国茨城県つくば市観音台1丁目25番11号
久光製薬株式会社 筑波研究所内
c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research
Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki
305-0856 JAPAN

この欄に記載した者は次に該当する:

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
(ここにレ印を付したときは、以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍 (国名): 日本国 JAPAN

住所 (国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☒ 米国のみ ☐ 追加欄に記載した指定国

☒ その他の出願人又は発明者が続業に記載されている。

第IV欄 代理人又は共通の代表者、通知のあて名

次に記載された者は、国際機関において出願人のために行動する:

☒ 代理人

☐ 共通の代表者

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

10284 弁理士 葛和 清司 KUZUWA Kiyoshi
〒160-0003 日本国東京都新宿区本塩町19番地 AOIビル
葛和国際特許事務所
Patent Attorneys, KUZUWA & PARTNERS, AOI Bldg.,
Honshio-cho 19, Shinjuku-ku, Tokyo 160-0003 JAPAN

電話番号:
03-5366-9961

ファクシミリ番号:
03-5366-9960

加入電話番号:

代理人登録番号:

☐ 通知のためのあて名: 代理人又は共通の代表者が選任されておらず、上記枠内に特に通知が送付されるあて名を記載している場合は、レ印を付す。

第三欄の続き その他の出願人又は発明者

この続表を使用しないときは、この用紙を願書に含めないこと。

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

山口 登志郎 YAMAGUCHI Toshiro
 〒305-0856 日本国茨城県つくば市観音台1丁目25番11号
 久光製薬株式会社 筑波研究所内
 c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research
 Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki
 305-0856 JAPAN

この欄に記載した者は
次に該当する：☐ 出願人のみである。☒ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である：☐ すべての指定国☐ 米国を除くすべての指定国☒ 米国のみ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

立石 哲郎 TATEISHI Tetsuro
 〒305-0856 日本国茨城県つくば市観音台1丁目25番11号
 久光製薬株式会社 筑波研究所内
 c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research
 Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki
 305-0856 JAPAN

この欄に記載した者は
次に該当する：☐ 出願人のみである。☒ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である：☐ すべての指定国☐ 米国を除くすべての指定国☒ 米国のみ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

肥後 成人 HIGO Naruhito
 〒305-0856 日本国茨城県つくば市観音台1丁目25番11号
 久光製薬株式会社 筑波研究所内
 c/o HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC., Tsukuba Research
 Laboratories, 25-11, Kannondai 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki
 305-0856 JAPAN

この欄に記載した者は
次に該当する：☐ 出願人のみである。☒ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）： 日本国 JAPAN

住所（国名）： 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である：☐ すべての指定国☐ 米国を除くすべての指定国☒ 米国のみ☐ 追記欄に記載した指定国

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

この欄に記載した者は
次に該当する：☐ 出願人のみである。☐ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
（ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと）

出願人登録番号：

国籍（国名）：

住所（国名）：

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である：☐ すべての指定国☐ 米国を除くすべての指定国☐ 米国のみ☐ 追記欄に記載した指定国☐ その他の出願人又は発明者が他の続表に記載されている。

第V欄 国の指定

(該当する□にレ印を付すこと；少なくとも1つの□にレ印を付すこと)。

規則 4.9(a)の規定に基づき次の指定を行う。ほかの種類の保護又は取扱をいずれかの指定国(又は OAPI)で求める場合には追記欄に記載する。

広域特許

- ☐ **AP** **ARIPO**特許：GHガーナ Ghana, GMガンビア Gambia, KEケニア Kenya, LSレソト Lesotho, MWマラウイ Malawi, MZモザンビーク Mozambique, SDスーダン Sudan, SLシエラ・レオネ Sierra Leone, SZスワジランド Swaziland, TZタンザニア United Republic of Tanzania, UGウガンダ Uganda, ZMザンビア Zambia, ZWジンバブエ Zimbabwe, 及びハラレプロトコルと特許協力条約の締約国である他の国(他の種類の保護又は取り扱いを求める場合には点線の上に記載する).....
- ☐ **EA** ユーラシア特許：AMアルメニア Armenia, AZアゼルバイジャン Azerbaijan, BYベラルーシ Belarus, KGキルギスタン Kyrgyzstan, KZカザフスタン Kazakhstan, MDモルドヴァ Republic of Moldova, RUロシア Russian Federation, TJタジキスタン Tajikistan, TMトルクメニスタン Turkmenistan, 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締約国である他の国.....
- ☐ **EP** ユーロoppa特許：ATオーストリア Austria, BEベルギー Belgium, BGブルガリア Bulgaria, CH and LI スイス及びリヒテンシュタイン Switzerland and Liechtenstein, CYキプロス Cyprus, CZチェコ Czech Republic, DEドイツ Germany, DKデンマーク Denmark, EEエストニア Estonia, ESスペイン Spain, FIフィンランド Finland, FRフランス France, GB英国 United Kingdom, GRギリシャ Greece, IEアイルランド Ireland, ITイタリア Italy, LUルクセンブルグ Luxembourg, MCモナコ Monaco, NLオランダ Netherlands, PTポルトガル Portugal, SEスウェーデン Sweden, SIスロヴェニア Slovenia, SKスロヴァキア Slovakia, TRトルコ Turkey, 及びユーロoppa特許条約と特許協力条約の締約国である他の国.....
- ☐ **OA** **OAPI**特許：BFブルキナ・ファソ Burkina Faso, BJベナン Benin, CF中央アフリカ Central African Republic, CGコンゴ Congo, CIコートジボアール Côte d'Ivoire, CMカメルーン Cameroon, GAガボン Gabon, GNギニア Guinea, GQ赤道ギニア Equatorial Guinea, GWギニア・ビサウ Guinea-Bissau, MLマリ Mali, MRモーリタニア Mauritania, NEニジェール Niger, SNセネガル Senegal, TDチャド Chad, TGトーゴ Togo, 及びアフリカ知的所有権機構のメンバー国であり特許協力条約の締約国である他の国(他の種類の保護又は取り扱いを求める場合には点線の上に記載する).....

国内特許 (他の種類の保護又は取り扱いを求める場合には点線の上に記載する)

- | | | |
|--|--|---|
| <input type="checkbox"/> AE アラブ首長国連邦
United Arab Emirates..... | <input type="checkbox"/> GE グルジア Georgia..... | <input type="checkbox"/> NZ ニュー・ジーランド New Zealand..... |
| <input type="checkbox"/> AG アンティグア・バーブダ
Antigua and Barbuda..... | <input type="checkbox"/> GH ガーナ Ghana..... | <input type="checkbox"/> OM オマーン Oman..... |
| <input type="checkbox"/> AL アルバニア Albania..... | <input type="checkbox"/> GM ガンビア Gambia..... | <input type="checkbox"/> PH フィリピン Philippines..... |
| <input type="checkbox"/> AM アルメニア Armenia..... | <input type="checkbox"/> HR クロアチア Croatia..... | <input type="checkbox"/> PL ポーランド Poland..... |
| <input type="checkbox"/> AT オーストリア Austria..... | <input type="checkbox"/> HU ハンガリー Hungary..... | <input type="checkbox"/> PT ポルトガル Portugal..... |
| <input type="checkbox"/> AU オーストラリア Australia..... | <input type="checkbox"/> ID インドネシア Indonesia..... | <input type="checkbox"/> RO ルーマニア Romania..... |
| <input type="checkbox"/> AZ アゼルバイジャン Azerbaijan..... | <input type="checkbox"/> IL イスラエル Israel..... | <input type="checkbox"/> RU ロシア Russian Federation..... |
| | <input type="checkbox"/> IN インド India..... | <input type="checkbox"/> SC セイシェル Seychelles..... |
| | <input type="checkbox"/> IS アイスランド Iceland..... | <input type="checkbox"/> SD スーダン Sudan..... |
| <input type="checkbox"/> BA ボスニア・ヘルツェゴヴィナ Bosnia
and Herzegovina..... | <input type="checkbox"/> JP 日本 Japan..... | <input type="checkbox"/> SE スウェーデン Sweden..... |
| <input type="checkbox"/> BB バルバドス Barbados..... | <input type="checkbox"/> KE ケニア Kenya..... | <input type="checkbox"/> SG シンガポール Singapore..... |
| <input type="checkbox"/> BG ブルガリア Bulgaria..... | <input type="checkbox"/> KG キルギスタン Kyrgyzstan..... | <input type="checkbox"/> SK スロヴァキア Slovakia..... |
| <input type="checkbox"/> BR ブラジル Brazil..... | <input type="checkbox"/> KP 北朝鮮
Democratic People's Republic of Korea..... | <input type="checkbox"/> SL シエラ・レオネ Sierra Leone..... |
| <input type="checkbox"/> BY ベラルーシ Belarus..... | <input type="checkbox"/> KR 韓国 Republic of Korea..... | <input type="checkbox"/> TJ タジキスタン Tajikistan..... |
| <input type="checkbox"/> BZ ベリーズ Belize..... | <input type="checkbox"/> KZ カザフスタン Kazakhstan..... | <input type="checkbox"/> TM トルクメニスタン Turkmenistan..... |
| <input type="checkbox"/> CA カナダ Canada..... | <input type="checkbox"/> LC セント・ルシア Saint Lucia..... | |
| <input type="checkbox"/> CH and LI スイス及びリヒテンシュタイン
Switzerland and Liechtenstein..... | <input type="checkbox"/> LK スリ・ランカ Sri Lanka..... | <input type="checkbox"/> TN テュニジア Tunisia..... |
| <input type="checkbox"/> CN 中国 China..... | <input type="checkbox"/> LR リベリア Liberia..... | <input type="checkbox"/> TR トルコ Turkey..... |
| <input type="checkbox"/> CO コロンビア Colombia..... | <input type="checkbox"/> LS レソト Lesotho..... | <input type="checkbox"/> TT トリニダード・トバゴ
Trinidad and Tobago..... |
| <input type="checkbox"/> CR コスタリカ Costa Rica..... | <input type="checkbox"/> LT リトアニア Lithuania..... | <input type="checkbox"/> TZ タンザニア
United Republic of Tanzania..... |
| <input type="checkbox"/> CU キューバ Cuba..... | <input type="checkbox"/> LU ルクセンブルグ Luxembourg..... | <input type="checkbox"/> UA ウクライナ Ukraine..... |
| <input type="checkbox"/> CZ チェコ Czech Republic..... | <input type="checkbox"/> LV ラトヴィア Latvia..... | <input type="checkbox"/> UG ウガンダ Uganda..... |
| <input type="checkbox"/> DE ドイツ Germany..... | <input type="checkbox"/> MA モロッコ Morocco..... | <input type="checkbox"/> US 米国 United States of America..... |
| <input type="checkbox"/> DK デンマーク Denmark..... | <input type="checkbox"/> MD モルドヴァ Republic of Moldova..... | |
| <input type="checkbox"/> DM ドミニカ Dominica..... | <input type="checkbox"/> MG マダガスカル Madagascar..... | <input type="checkbox"/> UZ ウズベキスタン Uzbekistan..... |
| <input type="checkbox"/> DZ アルジェリア Algeria..... | <input type="checkbox"/> MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア
共和国 The former Yugoslav Republic of
Macedonia..... | <input type="checkbox"/> VC セント・ヴィンセント及びグレナ
ディーン諸島 Saint Vincent and the
Grenadines..... |
| <input type="checkbox"/> EC エクアドル Ecuador..... | <input type="checkbox"/> MN モンゴル Mongolia..... | <input type="checkbox"/> VN ベトナム Viet Nam..... |
| <input type="checkbox"/> EE エストニア Estonia..... | <input type="checkbox"/> MW マラウイ Malawi..... | <input type="checkbox"/> YU ユーゴスラヴィア Yugoslavia..... |
| <input type="checkbox"/> ES スペイン Spain..... | <input type="checkbox"/> MX メキシコ Mexico..... | <input type="checkbox"/> ZA 南アフリカ共和国 South Africa..... |
| <input type="checkbox"/> FI フィンランド Finland..... | <input type="checkbox"/> MZ モザンビーク Mozambique..... | |
| <input type="checkbox"/> GB 英国 United Kingdom..... | <input type="checkbox"/> NO ノルウェー Norway..... | <input type="checkbox"/> ZM ザンビア Zambia..... |
| <input type="checkbox"/> GD グレナダ Grenada..... | | <input type="checkbox"/> ZW ジンバブエ Zimbabwe..... |

以下の□は、この様式の施行後に特許協力条約の締約国となった国を指定するためのものである。

- | | | |
|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |

指定の確認の宣言：出願人は、上記の指定に加えて、規則 4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の指定を行う。但し、追記欄にこの宣言から除く旨の表示をした国は、指定から除かれる。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。(指定の確認は、指定を待定する通知の提出と指定手数料及び確認手数料の納付からなる。この確認は、優先日から15月以内に受理官庁へ提出しなければならない。)

第VI欄 優先権主張

以下の先の出願に基づく優先権を主張する：

先の出願日 (日、月、年)	先の出願番号	先の出願		
		国内出願：パリ条約同盟国名又は WTO加盟国名	広域出願：*広域官庁名	国際出願：受理官庁名
(1) 25.01.02	特願2002- 16794	日本国 JAPAN		
(2)				
(3)				
(4)				
(5)				

☐ 他の優先権の主張（先の出願）が追記欄に記載されている。

上記の先の出願（ただし、本国原出願の受理官庁に対して出願されたものに限る）のうち、以下のものについて、出願書類の認証増本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁（日本国特許庁の長官）に対して請求する

☒ すべて ☐ 優先権(1) ☐ 優先権(2) ☐ 優先権(3) ☐ 優先権(4) ☐ 優先権(5) ☐ その他は追記欄参照

*先の出願がARIPO出願である場合には、当該先の出願を行った工業所有権の保護のためのパリ条約同盟国若しくは世界貿易機関の加盟国の少なくとも1ヶ国を表示しなければならない（規則4.10(b)(ii)）：.....

第VII欄 国際調査機関

国際調査機関（ISA）の選択（2以上の国際調査機関が国際調査を実施することが可能な場合、いずれかを選択し二文字コードを記載。）

ISA / JP

先の調査結果の利用請求：当該調査の照会（先の調査が、国際調査機関によって既に実施又は請求されている場合）
出願日（日、月、年） 出願番号 国名（又は広域官庁名）

第VIII欄 申立て

この出願は以下の申立てを含む。（下記の該当する欄をチェックし、右にそれぞれの申立て数を記載）

申立て数

- ☐ 第VIII欄(i) 発明者の特定に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(ii) 出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(iii) 先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(iv) 発明者である旨の申立て（米国を指定国とする場合） : _____
- ☐ 第VIII欄(v) 不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て : _____

第IX欄 照合欄；出願の言語

この国際出願は次のものを含む。

(a) 紙形式での枚数	
願書（申立てを含む）	5 枚
明細書（配列表または配列表 に関連する表を除く）	14 枚
請求の範囲	1 枚
要約書	1 枚
図面	0 枚
小計	21 枚
配列表	枚
配列表に関連する表	枚
(いずれも、紙形式での出願の場合はその枚数 コンピュータ読み取り可能な形式の有無を問わない。 下記(C)参照)	
合計	21 枚

(b) ☐ コンピュータ読み取り可能な形式のみの
(実施規則第 801 号(a)(i))

- (i) ☐ 配列表
(ii) ☐ 配列表に関連する表

(c) ☐ コンピュータ読み取り可能な形式と同一の
(実施規則第 801 号(a)(ii))

- (i) ☐ 配列表
(ii) ☐ 配列表に関連する表

媒体の種類（フロッピーディスク、CD-ROM、CD-R、その他）
と枚数

- ☐ 配列表
☐ 配列表に関連する表
(追加的写しは右欄 9. (ii) または 10(ii) に記載)

この国際出願には、以下にチェックしたものが添付されている。

1. <input checked="" type="checkbox"/> 手数料計算用紙	数
2. <input checked="" type="checkbox"/> 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面	1
3. <input checked="" type="checkbox"/> 国際事務局の口座への振込を証明する書面	1
4. <input checked="" type="checkbox"/> 個別の委任状の原本	1
5. <input type="checkbox"/> 包括委任状の原本	
6. <input type="checkbox"/> 包括委任状の写し（あれば包括委任状番号）	
7. <input type="checkbox"/> 記名押印（署名）の欠落についての説明書	
8. <input type="checkbox"/> 優先権書類（上記第 欄の（ ）の番号を記載する）	
9. <input type="checkbox"/> 国際出願の翻訳文（翻訳に使用した言語名を記載する）	
10. <input type="checkbox"/> 寄託した微生物又は他の生物材料に関する書面	
11. <input type="checkbox"/> コンピュータ読み取り可能な配列表 (媒体の種類と枚数も表示する)	
(i) <input type="checkbox"/> 規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写し (国際出願の一部を構成しない)	
(ii) <input type="checkbox"/> (左欄(b)(i)又は(c)(ii)に印を付した場合のみ) 規則 13 の 3 に基づき提出する国際調査のための写しを含む追加的写し	
(iii) <input type="checkbox"/> 国際調査のための写しの同一性、又は左欄に記載した配列表を含む写しの同 一性についての陳述書を添付	
12. <input type="checkbox"/> コンピュータ読み取り可能な配列表に関連する表 (媒体の種類と枚数も表示する)	
(i) <input type="checkbox"/> 実施規則第 802 号の 4 に基づき提出する国際調査のための写し (国際出願の一部を構成しない)	
(ii) <input type="checkbox"/> (左欄(b)(ii)又は(c)(ii)に印を付した場合のみ) 実施規則第 802 号の 4 に基づき提出する国際調査のための写しを含む追加的写し	
(iii) <input type="checkbox"/> 国際調査のための写しの同一性、又は左欄に記載した、配列表に関連した表 を含む写しの同一性についての陳述書を添付	
13. <input type="checkbox"/> その他（書類名を具体的に記載）	

要約書とともに提示する図面：

本国際出願の言語： 日本語

第X欄 出願人、代理人又は共通の代表者の記名押印

各人の氏名（名称）を記載し、その次に押印する。

葛和 清司



1. 国際出願として提出された書類の実際の受理の日

受理官庁記入欄

3. 国際出願として提出された書類を補充する書面又は図面であって
その後期間内に受理されたものの実際の受理の日（訂正日）

4. 特許協力条約第 11 条（2）に基づく必要な補充の期間内の受理の日

5. 出願人により特定された
国際調査機関

ISA / JP

6. ☐ 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に
調査用写しを送付していない。

2. 図面

- ☐ 受理された
☐ 不足図面がある

国際事務局記入欄

記録原本の受理の日：

明 細 書

粘着剤およびこれを用いてなる貼付製剤

技術分野

本発明は皮膚面に貼付して、皮膚を通して薬物を生体内へ連続的に投与するための粘着剤およびこれを用いてなる貼付製剤に関する。

背景技術

貼付剤を構成する粘着剤層は、通常、薬物を含むポリマーを主成分とする混合物からなるが、この混合物の粘着性や凝集性を向上させる手段として製剤化の過程で適当な架橋剤を加えて架橋ポリマーを形成し、粘着層をゲル化させる手法が各種行われてきた。こういった粘着剤としては、あらかじめ架橋させたポリマーに薬物等を混合する手法によって得られるものもあるが、粘着層中に十分量の薬物を含有させることや、成形上の問題から、製剤化の過程で、薬物を含む、ポリマーを主成分とする混合物中に適当な架橋剤を加えてゲル化させる方法が広く採られている。

貼付製剤に用いられる薬物の多くは親油性であるため、粘着層を構成するポリマーには実質的に水を含まない親油性のアクリル系ポリマー等が各種用いられている。こういった非水系の貼付製剤においては、とくに近年、薬物の透過性を向上させるための成分として適当な液状物質がしばしば含有されるが、そのために粘着層の粘着性、凝集性がさらに低下するのでポリマーの架橋はより重要な課題となる。

ポリマーの架橋は一般にポリマー中の架橋官能基と適当な架橋剤との反応によって行われる。代表的な架橋官能基にはカルボキシル基、アミノ基、水酸基等がある。このうち、水酸基によるものはカルボキシル基、アミノ基によるものと比べ、反応性が低いことから、残留する官能基による発赤、浮腫等の皮膚刺激は一般に少なく、長時間皮膚に貼り付けておく必要のある貼付型製剤への適用に適していると考えられる。

水酸基含有ポリマーの架橋剤としては金属キレート、金属アルコラート等の

使用が特許第 2967788 号によって提唱されているが、金属キレート、金属アルコラートは一般に反応性が高いために架橋反応中における薬物の分解、変性の可能性があり、また、残留する架橋剤による皮膚刺激やさらに重篤な症状を引き起こす危険性も有する。

一方、水系ゲルの形成において従来より、穏和な条件で反応し、水酸基含有ポリマーと架橋を形成するカルシウム、マグネシウム等の多価金属塩、ホウ酸塩、ケイ酸塩等が利用されてきた。しかしながらこれら無機化合物は一般に有機溶媒へ溶解性が低いなどの調製上の問題から非水系ゲルの調製のためにはこれまで用いられてこなかった。

従って、本発明の課題は、従来の問題点を解決し、貼付剤の膏体として十分な粘着性、凝集性を有する、親油性薬物などを含有するのに適した水系、または非水系ポリマーから製造される粘着剤およびそれを用いた貼付製剤を提供することにある。

なお、本明細書において「非水系ポリマー」とはポリマーの溶媒として、有機溶媒、または有機溶媒を主成分とする混合溶媒を用いたポリマーのことを表し、「水系ポリマー」とはポリマーの溶媒として、水、または水を主成分とする混合溶媒を用いたポリマーのことを表す。

発明の開示

そこで、本発明者らは上記課題を解決するために鋭意研究を重ねる中で、従来よりポリビニルアルコールの水系ゲルの形成に利用される含ホウ素化合物を架橋剤として用いることによって、ポリマー分子内に水酸基を持てば、ポリビニルアルコール以外であっても、水系、非水系にかかわらず十分な粘着性、凝集性を有する粘着剤が得られることを見出し、さらに研究を続けた結果、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明は、アクリル系またはメタクリル系モノマー単位の 1 種または 2 種以上を含み、該モノマー単位の少なくとも 1 種が水酸基を有するポリマーであって、含ホウ素化合物によって架橋されている前記ポリマーを含有する粘着剤に関する。

また本発明は、含ホウ素化合物が、ホウ酸またはホウ酸誘導体である、前記

の粘着剤に関する。

さらに本発明は、実質的に水を含まない、前記の粘着剤に関する。

また本発明は、ポリマーと相溶する液状成分を含む、前記の粘着剤に関する。

さらに本発明は、前記の粘着剤を含む貼付製剤に関する。

また本発明は、粘着剤が、薬物を含む、前記の貼付製剤に関する。

さらに本発明は、実質的に水を含まない、前記の貼付製剤に関する。

なお、本明細書において、「実質的に水を含まない」とは、粘着剤または貼付製剤の製造において水を使わないか、または製造された粘着剤または貼付製剤が水を含まないことを意味する。

本発明における架橋剤としての含ホウ素化合物は、親水性有機溶剤に十分な濃度で溶解するため、実質的に水を含まないポリマーに対しても架橋させることが可能となり、このため十分な粘着力、凝集力をもたらし、例えば、親油性薬物や液状成分などを含む貼付製剤として望ましい物性を実現することができる。

発明を実施するための形態

本発明の粘着剤中の組成および形態に関して説明する。

本発明の粘着剤に含まれるポリマーの架橋モノマー単位としては、単位中に少なくとも1つの水酸基を有していれば、とくに限定されない。

具体的には、アクリル酸2-ヒドロキシエチル、アクリル酸3-ヒドロキシプロピル、アクリル酸4-ヒドロキシブチルなどの水酸基を有するアクリル系モノマー単位、メタクリル酸2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸3-ヒドロキシプロピル、メタクリル酸4-ヒドロキシブチルなどの水酸基を有するメタクリル系モノマー単位、ビニルアルコール、アリルアルコール、3-ブテン-1-オール、3-ブテン-2-オールなどのモノマー単位等が挙げられる。これらのうち、水酸基を有するアクリル系モノマー単位および水酸基を有するメタクリル系モノマー単位が好ましい。とくにアクリル酸2-ヒドロキシエチルが好ましい。

これらの水酸基含有モノマー単位は単独もしくは2種類以上であることができる。

本発明において、水系ポリマーおよび非水系ポリマーのいずれであっても使

用できるが、非水系ポリマーを使用する場合、アクリル系ポリマーおよびメタクリル系ポリマーが好適に使用される。

本発明で使用されるアクリル系またはメタクリル系ポリマーはとくに限定されないが具体的には、アクリル酸、メタクリル酸、アクリロニトリル、あるいはアクリルおよびメタクリル酸のメチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ウンデシルドデシル、トリデシル等の直鎖アルキルエステルや2-エチルヘキシル等の分岐アルキルエステル、2-ヒドロキシエチル、3-ヒドロキシプロピル、4-ヒドロキシブチル等の置換アルキル基等の置換アルキルエステルが挙げられる。これらのモノマーは、本発明の粘着剤において前記水酸基含有モノマーに加えて、1種類もしくは2種以上で使用する事ができる。

また、粘着剤に含まれるポリマー中、アクリル系モノマーまたはメタクリル系モノマーが主成分であることが好ましく、アクリル系モノマーまたはメタクリル系モノマーがポリマーに対して、30重量%以上、好ましくは50～90重量%、とくに好ましくは70～90重量%含まれる。

本発明の粘着剤に含まれるポリマーは、水酸基含有モノマーおよび、アクリル系またはメタクリル系モノマーのほかに、他のモノマーが1種または2種以上含まれていてもよい。このようなモノマーとしては、具体的には酢酸ビニル、N-ビニル-2-ピロリドン、イタコン酸、マレイン酸、アリルアミン、スチレン、反応性ポリマー（マクロモノマー）、プロピオン酸ビニル、メチルビニルピロリドン、ビニルピリジン、ビニルピペリドン、ビニルピペラジン、ビニルピラジン、ビニルピロールビニルイミダゾール、ビニルカプロラクタム、ビニルオキサゾール、ビニルモルホリン、2-エチルヘキシルアクリレート、ビニルピロリドン、メトキシエチルアクリレート、アクリル酸等が挙げられる。とくに好ましくは2-エチルヘキシルアクリレート、ビニルピロリドンが挙げられる。

上記モノマー成分を含む本発明の貼付製剤の製造に用いられるポリマーは、水酸基が含まれ、少なくとも1種類のアクリルまたはメタクリル系成分が含まれればとくに限定されず、単一のモノマーの重合体または共重合体のいずれでもよいが、とくに共重合体が好ましい。具体的にはアクリル酸2-ヒドロキシエ

チル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、N-ビニル-2-ピロリドン共重合体等が挙げられる。

本発明の粘着剤の製造に用いられるポリマーの溶媒としては、ポリマーを溶解させ、あるいは均一なエマルジョンを形成されることができれば、水系、有機系を問わないが、60℃～150℃の加熱によって除去でき、非水系ゲルを形成することのできる低沸点有機溶媒、具体的には酢酸エチル、トルエン、THF、ヘキサン、ジクロロメタン、クロロホルム、エーテル、メタノール、エタノール等が好ましい。

本発明の粘着剤に含まれるポリマーの架橋に用いることができる含ホウ素化合物としては、ホウ素が+3価であるホウ酸及びその誘導体が挙げられる。ホウ酸誘導体としては、ホウ酸塩、ホウ酸エステルが挙げられる。ホウ酸塩としては、ホウ素が+3価であれば、縮合数に限定されない、化学的に許容される無機および有機塩が挙げられる。具体的には、四ホウ酸ナトリウム、ホウ酸アンモニウムが挙げられる。ホウ酸エステルとしてはホウ酸メチル、ホウ酸エチル、ホウ酸プロピル、ホウ酸ブチルなどが挙げられる。とくにホウ酸が望ましい。また、これらの化合物は無水物でも水和物でも良いが、無水物がより好ましい。

これらの架橋剤としての含ホウ素化合物は、粘着剤、および製剤の物性、皮膚への刺激性を考慮すると、粘着剤層の組成全体の重量に基づいて、0.01～20重量%であることが望ましく、さらに好ましくは0.1～10重量%、とくに好ましくは0.1%～5重量%で配合されることができる。

本発明の粘着剤は、ポリマーと相溶する液状成分を含有していてもよく、このような液状成分としては、とくに限定されないが、親油性の液状成分が挙げられ、吸収促進剤、溶解剤、可塑剤などであることができる。

吸収促進剤としては、カプリル酸、カプロン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、オレイルアルコール、ステアリルアルコール、セチルアルコール、ラウリン酸メチル、ラウリン酸ヘキシル、ラウリン酸ジメタノールアミド、ミリスチン酸イソプロピルが挙げられる。

可塑剤としては、スクワラン、クスワレン、シリコンオイル、石油系オイル（例えば、パラフィン系プロセスオイル、ナフテン系プロセスオイル、芳香族系プロセスオイル）、植物系オイル（例えば、オリーブ油、ひまし油、ツバキ油、トール油、らっかせい油）などが挙げられる。

溶解剤としては、ジプロピレングリコール、グリセロール、エチレングリコール、ポリエチレングリコールなどが挙げられる。

また、本発明の粘着剤を貼付剤に用いる場合、粘着剤に基材を含むように一体的に成形してもよく、粘着剤をシート状に形成し、これを粘着層とすることができ、必要に応じて、該粘着層を支持する支持体層および粘着層上に設けられる離白紙層からなることができる。

本発明の粘着剤からなる粘着層において使用される薬物としては、経皮的に生体膜を透過しうるものであればとくに限定されない。本発明で使用される薬物としては、全身麻酔剤、睡眠・鎮痛剤、解熱消炎鎮痛剤、ステロイド系抗炎症剤、興奮・覚醒剤、鎮暈剤、精神神経用剤、局所麻酔剤、骨格筋弛緩剤、自立神経用剤、鎮痙剤、抗パーキンソン病、抗ヒスタミン剤、強心剤、不整脈用剤、利尿剤、血圧降下剤、血管収縮剤、血管拡張剤、動脈硬化用剤、呼吸促進剤、呼吸促進剤、鎮咳去痰剤、消化性潰瘍治療剤、利胆剤、ホルモン剤、泌尿生殖器及び肛門用剤、寄生性皮膚疾患用剤、皮膚軟化剤、ビタミン剤、無機質製剤、止血剤、血液凝固阻止剤、肝臓疾患用剤、習慣性中毒用剤、痛風治療剤、糖尿病用剤、抗悪性腫瘍剤、放射線医薬品、漢方製剤、抗生物質、化学療法剤、駆虫剤・抗原虫剤、麻薬などが挙げられる。

解熱消炎鎮痛剤としては、アセトアミノフェノン、フェナセチン、メフェナム酸、ジクロフェナック、フルフェナム酸、アスピリン、サリチル酸、アミノピリン、アルクロフェナック、イブプロフェン、ナプロキセン、フルルビプロフェン、ケトプロフェン、アンフェナックナトリウム、メビリゾール、インドメタシン、ペンタゾシン、ピロキシカム等；ステロイド系抗炎症剤としては、ヒドロコルチゾン、トリアムシノロン、デキサメタゾン、ベタメタゾン、プレドニゾロン等が、それぞれ挙げられる。

血管拡張剤としては、ジルチアゼム、ペンタエリスリトール、イソソルビド、

トラビジル、ニコランジル、ニトログリセリン、プレニラミン、モルシドミン、アミド、トラゾリン等；不整脈用剤としては、プロカインアミド、リドカイン、プロプラノロール、アルブレノロール、アテノロール、ナドロール、メトプロロール、アジマリン、ジソピラミド、メキシチレン等；血圧降下剤としては、エカラジン、インダパミド、クロニジン、ブニトロロール、ラベタロール、カプトプリル、グアナベンズ、メブタメート、ベタニジン等が、それぞれ挙げられる。

鎮咳去痰剤としては、カルベタベンタン、クロベラスチン、オキセラジン、クロブチノール、クロフェダノール、ノスカピン、エフェドリン、イソプロテレノール、クロルブレナリン、メトキシフェナミン、プロカテロール、ツロブテロール、クレンブテロール、ケトチフェン等；抗悪性腫瘍剤としては、シクロフォスファミド、フルオロウラシル、デガフル、マイトマイシンC、プロカルバジン、ドキシフルリジン、ラニムスチン等；局所麻酔剤としては、アミノ安息香酸エチル、テトラカイン、プロカイン、ジブカイン、オキシプロカイン、アンブロキソール、プロビトカイン等が、それぞれ挙げられる。

ホルモン剤としては、プロビルチオウラシル、チアマゾール、酢酸メテノロン、エストラジオール、酢酸ノルエチステロン、エストリオール、プロゲステロン等；抗ヒスタミン剤としては、ジフェノンヒドラミン、クロルフェニラミン、プロメタジン、シプロヘプタジン、ジフェニルピラリン等；血液凝固促進剤としては、ワルファリンカリウム、チクロピジン等；鎮痙剤としては、臭化メチルアトロピン、スコボラミン等；全身麻酔剤としては、チオペンタールナトリウム、ベントバルビタールナトリウム等；催眠・鎮痛剤としては、ブロムワレリル尿素、アモバルビタール、フェノバルビタール等；抗癲癇剤としてはフェニトイン等；興奮剤・覚醒剤としてはメタンフェタミン等が、それぞれ挙げられる。

鎮暈剤としては、ジフェニドール、ベタヒスチン等；精神神経用剤としては、クロルプロマジン、チオリダジン、メプロバメート、イミプラミン、クロルジアゼボキシド、ジアゼパム等；骨格筋弛緩剤としては、スキサメトニウム、エベリゾン等；自律神経用剤としては、臭化ネオスチグミン、塩化ベタネコール

等；抗パーキンソン剤としてはベルゴリド、アマンタジン等；利尿剤としては、ヒドロフルメチアジド、イソソルビド、フロセミド等；血管収縮剤としてはフェニレフリン等；呼吸促進剤としては、ロベリン、ジモルホラミン、ナロキソン等；消化性潰瘍治療剤としては、臭化グリコピロニウム、プログルミド、セトラキサート、シメチジン、スピゾフロンの等が、それぞれ挙げられる。

利胆剤としては、ウルソデスオキシコール酸、オサルミド等；泌尿生殖器及び肛門用剤としては、ヘキサミン、スバルティン、ジノプロスト、リトドリン等；寄生性皮膚疾患用剤としては、サリチル酸、シクロピロクスオラミン、クロコナゾール等；皮膚軟化剤としては尿素等；ビタミン剤としては、カルシトリオール、チアミン、リン酸リボフラビンナトリウム、ピリドキシン、ニコチン酸アミド、パンテノール、アスコルビン酸等；止血剤としてはエタンシラート等が、それぞれ挙げられる。

肝臓疾患用剤としてはチオプロニン等；習慣性中毒用剤としてはシアナミド等；痛風治療剤としては、コルヒチン、プロベネシド、スルフィンピラゾン等；糖尿病用剤としては、トルブタミド、クロルプロバミド、グリミジンナトリウム、グリブゾール、ブホルミン、インスリン等；抗生物質としては、ベンジルペニシリン、プロピシリン、クロキサシリン、アンピシリン、バカンピシリン、カルベニシリン、セファロリジン、セフォキシチン、エリスロマイシン、クロラムフェニコール、テトラサイクリン、硫酸カナマイシン、サイクロセリン等；化学療法剤としては、イソニアシド、ピラジナミド、エチオナミド等；麻薬としては、モルヒネ、リン酸コデイン、コカイン、フェンタニル、ベチジン等が、それぞれ挙げられる。

なお、これらの薬物は単独で用いても2種類以上併用してもよく、無機塩あるいは有機塩のいずれの形態の薬物も当然含まれる。また、薬物は貼付製剤の十分な透過量および発赤等の皮膚への刺激性等を考慮して、粘着層の組成全体の重量に基づいて、0.1～30重量%の量で配合されることができる。

本発明の貼付製剤の粘着層には吸収促進剤を含有させてもよく、使用される吸収促進剤としては、従来皮膚への吸収促進効果が認められている化合物のいずれでもよく、例えば炭素数6～20の脂肪酸、脂肪アルコール、脂肪酸エ

ステル、またはエーテル類、芳香族系有機酸、芳香族系アルコール、芳香族系有機酸エステル、またはエーテル（以上は飽和不飽和のいずれでもよく、また、環状、直鎖状、分枝状のいずれでもよい）、さらに、乳酸エステル類、酢酸エステル類、モノテルペン系化合物、エイゾン（Azone）、エイゾン誘導体、グリセロール脂肪酸エステル類、ソルビタン脂肪酸エステル類（Span 系）、ポリソルベート系（Tween 系）、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油系（HCO 系）、糖脂肪酸エステル類等が挙げられる。

具体的にはカプリル酸、カプリン酸、カブロン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、オレイルアルコール、セチルアルコール、ラウリンサンメチル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸ミリスチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、パルミチン酸セチル、サリチル酸、サリチル酸メチル、サリチル酸エチレングリコール、ケイ皮酸、ケイ皮酸メチル、クレゾール、乳酸セチル、乳酸エチル、乳酸プロピル、ゲラニオール、チモール、オイゲノール、テルピネオール、1-メントール、ボルネオオール、d-リモネン、イソオイゲノール、イソボルネオール、ネロール、d-1-カンフル、グリセリルモノラウレート、ショ糖モノラウレート、ポリソルベート20、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリエチレングリコールモノラウレート、ポリエチレングリコールモノステアレート、HCO-60、1-[2-(デシルチオ)エチル]アザシクロペンタン-2-オン（以下、「ピロチオデカン」と略記する）が好ましく、とくにラウリルアルコール、1-メントール、プロピレングリコール、ピロチオデカン、ジプロピレングリコール、ミリスチン酸イソプロピルが好ましい。

このような吸収促進剤は貼付製剤としての十分な透過性および発赤、浮腫等の皮膚への刺激性等を考慮して、粘着層の組成全体の重量に基づいて、0.01～60重量%であることが望ましく、さらに好ましくは0.1～40重量%、とくに好ましくは0.1%～20重量%の量で配合されることができる。

また、必要に応じて、抗酸化剤、防腐剤、紫外線吸収剤、結晶化防止剤を用いることができ、抗酸化剤としてはトコフェロールおよびこれらのエステル誘

導体、アスコルビン酸、アスコルビン酸ステアリン酸エステル、ノルジヒトログアヤレチン酸、ジブチルヒドロキシトルエン (BHT)、ブチルヒドロキシアニソール等が好ましい。防腐剤としては、パラオキシ安息香酸エチル、パラオキシ安息香酸プロピル、パラオキシ安息香酸ブチル等が望ましい。紫外線吸収剤としては紫外線吸収剤としては、p-アミノ安息香酸誘導体、アントラニル酸誘導体、サリチル酸誘導体、クマリン誘導体、アミノ酸系化合物、イミダゾリン誘導体、ピリミジン誘導体、ジオキサン誘導体などが望ましい。結晶化防止剤としてはポリビニルピロリドン等が望ましい。このような抗酸化剤、防腐剤、紫外線吸収剤、結晶化防止剤は合計で貼付製剤の粘着層の組成全体の重量に基づいて、好ましくは15重量%以下、さらに好ましくは10重量%以下の量で配合されることができる。

このような組成を有する粘着層はいずれの方法によっても製造されることができる。例えば、薬物を含む基剤組成を熱融解させ、離型紙または支持体に塗工後、支持体又は離白紙と張り合わせて本剤を得る。また、薬物を含む基剤成分をトルエン、ヘキサン、酢酸エチル等の溶媒に溶解させ、離白紙または支持体に上に伸展して溶剤を乾燥除去後、支持体あるいは離白紙と張り合わせて本剤を得る。また、本発明の貼付製剤は粘着剤からなる粘着層が含ホウ素化合物と薬物を含む上記のような組成であれば、その他の構成や各構成成分の素材はいずれの種類のものであってもよい。

例えば、本発明の貼付製剤は上記粘着層の他、それを支持する支持体層および粘着層上に設けられる離白紙層からなることができる。支持体層は伸縮性または非伸縮性の支持体を用いることができる。例えば、布、不織布、ポリウレタン、ポリエステル、ポリ酢酸ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート、アルミニウムシート、又はそれらの複合素材から選択される。

以下、本発明の実施例を示して、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではなく、本発明の技術思想を逸脱しない範囲での種々の変更が可能である。なお、実施例において、「%」は全て重量%を意味するものとする。

実施例 1

Duro-TAK (No.387-2287)	4.45 g	89%
酢酸エチル溶液 (固形分濃度: 50%)		
ミリスチン酸イソプロピル	0.5 g (固形分)	10%
ホウ酸 [メタノール溶液 (30mg/mL)]	0.05 g	1%
全量	5.0 g	100%

上記組成物中、アクリル系ポリマーである Duro-TAK (No. 387-2287、ナショナルスターチアンドケミカル社製) およびミリスチン酸イソプロピルを混合して酢酸エチル 2 mL を加えて 1 時間攪拌した後にホウ酸溶液を加えて 5 分間攪拌し、粘着層溶液を調製した。これを厚さ 80 μ m のポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムのシリコーン処理面に伸展し、100℃で 15 分間熱架橋させ、80 μ m の粘着層を得た。さらに支持体として厚さ 30 μ m のサンドマット処理 PET フィルムをサンドマット処理面が粘着層に接するように積層して本発明のマトリクス製剤を得た。このようにして得られた製剤を 65℃で 48 時間保管した後に粘着力をブローブタックテスターによって測定したところ、102 gF と良好であり、かつ 25 ϕ に裁断した試験片を上腕部に貼付し、2 時間後剥離したところ、皮膚への粘着剤のこりは認められなかった。この結果から本発明の粘着剤を用いて得られた製剤が適度な粘着と凝集力を有する、貼付剤としての性能を有していることが判る。

実施例 2

Duro-TAK (No.387-2287)	2.9g (固形分)	58%
エストラジオール	0.2g	4%
酢酸ノルエチステロン	0.35g	7%
ミリスチン酸イソプロピル	0.5g	10%
ポリビニルピロリドン	1.0g	20%
ホウ酸 [メタノール溶液 (30mg/mL)]	0.05g	1%
全量	5.0g	100%

上記組成物中、エストラジオール、酢酸ノルエチステロン、ミリスチン酸イソプロピル、ポリビニルピロリドンを混合し、エタノールを2 mL 加えて2時間攪拌後、Duro-TAK および酢酸エチル1 mL を加えて溶解させ、さらに3時間均一な溶液となるまで攪拌した。これにホウ酸溶液を加えて5分間攪拌し、粘着層溶液を調製した。これを実施例1と同様の方法で伸展し、支持体層を積層して本発明のマトリクス製剤を得た。このようにして得られた製剤を65℃で48時間保管した後に製剤の粘着力をプローブタックテスターによって測定したところ、267 gF と良好であり、かつ25φに裁断した試験片を上腕部に貼付し、30分後剥離したところ、皮膚への粘着剤のこりは認められなかった。また、本製剤中の薬物濃度は仕込み濃度に対してエストラジオール、酢酸ノルエチステロンに関してそれぞれ実測で100.7%、100.4%となり、架橋反応時における薬物の分解は実質的に認められなかった。さらに本製剤の40℃における安定性を調べたところ、1ヶ月の経変で、初期濃度に比してエストラジオール、酢酸ノルエチステロンに関してそれぞれ99.8%、100.4%と良好な数値を与えた。

比較例 1

Duro-TAK (No.387-2287)	4.5g(固形分)	90%
ミリスチン酸イソプロピル	0.5g	10%
全量	5.0g	100%

上記組成物を混合して1時間攪拌して粘着層溶液を調製した。これにホウ酸溶液を加えないこと以外は実施例1と同様の操作でマトリクス製剤を得た。このようにして得られた製剤を65℃で48時間保管した後に製剤を25φに裁断した試験片を上腕部に貼付し、2時間後剥離したところ、皮膚への粘着剤のこりが認められた。

比較例 2

Duro-TAK (No.387-2287)	2.95g(固形分)	59%
エストラジオール	0.2g	4%
酢酸ノルエチステロン	0.35g	7%
ミリスチン酸イソプロピル	0.5g	10%
ポリビニルピロリドン	1.0g	20%
全量	5.0g	100%

上記組成物中、エストラジオール、酢酸ノルエチステロン、ミリスチン酸イソプロピル、ポリビニルピロリドンを混合し、エタノールを2 mL 加えて2時間攪拌後、Duro-TAK および酢酸エチル2 mL を加えて、さらに3時間攪拌して粘着層溶液を調製した。これにホウ酸溶液を加えないこと以外は実施例2と同様の操作でマトリックス製剤を得た。このようにして得られた製剤を65℃で48時間保管した後に製剤を25φに裁断した試験片を上腕部に貼付し、30分後剥離したところ、皮膚への粘着剤のこりが認められた。

<接着力試験>

接着力の測定は次のとおり行った。

測定方法：各貼付剤を縦横それぞれ1 cm の試験片に裁断した後に理学工業製プローブタックテスター (No.1216 S) を用いて以下の条件でタック値を測定した。

プローブ：ベークライト

接着時間：1秒

引き下げ速度：1 mm/sec

圧着加重：200 g

<薬物含量試験>

薬物含量の測定は次のとおり行った。

測定方法：各貼付製剤をφ25の試験片に裁断した後に離型紙をはがして粘着層と支持体の重量の和を測定し、これを50 mL 遠沈管に入れて40 mL のアセトニトリル溶液および内部標準物質として10 mL の0.05%ベンゾフェノンアセトニトリル溶液を加えて、60分間超音波抽出した。抽出液の0.1 mL をとってメンブレンフィルタで濾過した後に0.9 mL のアセトニトリルで希釈

して高速液体クロマトグラフ装置を用い、エストラジオール、酢酸ノルエチステロン、および内部標準物質の面積比により各製剤中の薬物含量を算出した。薬物抽出後の製剤を取り出し、支持体より粘着層を除去して乾燥し、支持体の重量を測定し、粘着層の重量を測定して、この重量および各薬物の含量より薬物濃度を計算した。

産業上の利用の可能性

本発明の粘着剤を用いた貼付製剤は、親油性薬物などを含有するのに適した水系および非水系ポリマーからなる粘着剤を含み、十分な粘着性、凝集性を有する有用な貼付製剤である。

請 求 の 範 囲

1. アクリル系またはメタクリル系モノマー単位の1種または2種以上を含み、該モノマー単位の少なくとも1種が水酸基を有するポリマーであって、含ホウ素化合物によって架橋されている前記ポリマーを含有する粘着剤。
2. 含ホウ素化合物が、ホウ酸またはホウ酸誘導体である、請求項1に記載の粘着剤。
3. 実質的に水を含まない、請求項1または2に記載の粘着剤。
4. ポリマーと相溶する液状成分を含む、請求項1～3のいずれかに記載の粘着剤。
5. 請求項1～4のいずれかに記載の粘着剤を含む貼付製剤。
6. 粘着剤が、薬物を含む、請求項5に記載の貼付製剤。
7. 実質的に水を含まない、請求項5または6に記載の貼付製剤。

要 約 書

貼付剤の膏体として十分な粘着性、凝集性を有する、親油性薬物などを含有するのに適した水系および非水系ポリマーからなる粘着剤およびそれを用いた貼付製剤を提供するため、本発明は、アクリル系またはメタクリル系モノマー単位の1種または2種以上を含み、該モノマー単位の少なくとも1種が水酸基を有するポリマーであって、含ホウ素化合物によって架橋されているポリマーを含有する粘着剤およびそれを含む貼付製剤に関する。